

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-323509

(43)Date of publication of application : 26.11.1999

(51)Int.Cl.

C22C 38/00

C22C 33/02

C22C 45/02

H01F 1/053

H01F 41/02

(21)Application number : 10-134033

(71)Applicant : ALPS ELECTRIC CO LTD

INOUE AKIHISA

(22)Date of filing : 15.05.1998

(72)Inventor : KOJIMA AKINOBU

MAKINO TERUHIRO

YAMAMOTO YUTAKA

INOUE AKIHISA

## (54) HARD MAGNETIC ALLOY COMPACTED BODY AND ITS PRODUCTION

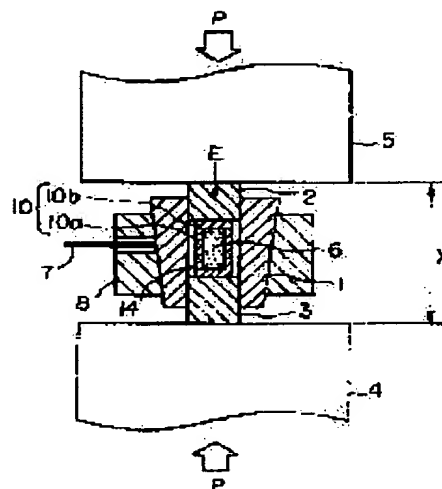
## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a hard magnetic alloy high in compacting density and excellent in strength and magnetic performance by compacting the powders of an alloy of an Fe base or an FeCo base contg. elements R composed of one or more kinds of rare earth elements by specified ratio of atomic % and having a structure contg. amorphous phases by rapid cooling and deforming it in plural directions.

**SOLUTION:** This alloy is the one contg. elements R by 4 to 20 atomic %. In the alloy compacted body, the plural directions may be the pressuring direction at the time of compacting and also may be the directions different from the same, and the density of the compacted body obtd.

by subjecting the alloy powders to compacting is preferably regulated to  $\cdot 90\%$ . The hard magnetic compacted body is essentially consisting of a mixed phase structure of soft magnetic phases and hard magnetic phases of the fine structure of  $\cdot 100 \mu\text{m}$  average crystal grain size. A case 10 filled with alloy

powders 6 is arranged between upper and lower punches 2 and 3. The space between the case 10 and a die 1 is provided with a gap 14, the inside of a chamber 13 is evacuated and a pressurizing force P is applied by the upper and lower punches 2 and 3, and the case is deformed in the upper and lower direction and in the left and right directions to solidify the alloy powders 6.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-323509

(43) 公開日 平成11年(1999)11月26日

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

C 2 2 C 38/00

3 0 3

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

33/02

33/02

H

45/02

45/02

A

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 41/02

G

41/02

1/04

H

審査請求 未請求 請求項の数32 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号

特願平10-134033

(22) 出願日

平成10年(1998)5月15日

(71) 出願人 000010098

アルプス電気株式会社

東京都大田区雪谷大塚町1番7号

(71) 出願人 591112625

井上 明久

宮城県仙台市青葉区川内元支倉35番地 川内住宅11-806

(72) 発明者 小島 章伸

東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプス電気株式会社内

(74) 代理人 弁理士 志賀 正武 (外9名)

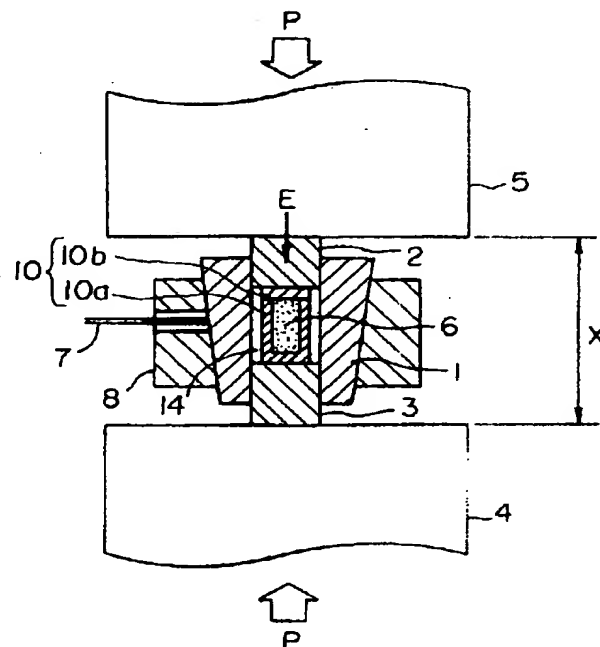
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 硬磁性合金圧密成形体およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 高い成形密度で、材料強度及び硬質磁気性能にも優れた硬磁性合金圧密成形体およびその製造方法の提供。

【解決手段】 非晶質相を主体とする粉体6を固化成形するに際して、粉体6を固化成形すると同時に複数方向に変形させることを特徴とする圧密成形体の製造方法。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 希土類元素のうちの 1 種以上からなる元素 R が 4～20 原子%含まれる Fe 系又は FeCo 系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金の粉体が固化成形されるとともに複数方向に変形されたものであることを特徴とする合金圧密成形体。

【請求項 2】 請求項 1 記載の合金圧密成形体において、前記複数方向が固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であることを特徴とする合金圧密成形体。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体の相対密度が 90%以上であることを特徴とする合金圧密成形体。

【請求項 4】 請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体が平均結晶粒径 100 μm 以下の微細組織からなるソフト磁性相とハード磁性相との混相組織を主体とするものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 5】 請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体は成形時の変形方向に磁気異方性を示すものであることを特徴する硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 6】 請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体は 1 kOe 以上の保磁力を有するものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 7】 請求項 1 ないし 6 のいずれかに記載の合金圧密成形体において、前記合金は急冷により非晶質相からなる組織または平均結晶粒径 100 nm 以下の微細結晶質相が析出した組織とされたものであり、該合金の粉体が応力下において結晶化または前記微細結晶質相が粒成長されるとともに圧密化されてなることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 8】 請求項 1 ないし 7 のいずれかに記載の合金圧密成形体において、非晶質相を含み、結晶化したときに硬磁性を発現する合金の粉体が結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形されてなることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 9】 請求項 4 ないし 5 のいずれかに記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

$T_xM_yR_zB_w$

ただし、T は Fe、Co、Ni のうち 1 種以上の元素を表わし、M は Zr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、W のうち 1 種以上の元素を表わし、R は希土類元素のうち 1 種以上の元素を表わし、B はホウ素を表わし、組成比を示す x、y、z、w は原子%で、 $5.0 \leq x$ 、 $0 \leq y \leq 1.5$ 、 $3 \leq z \leq 2.0$ 、 $2 \leq w \leq 2.0$  である。

【請求項 10】 請求項 9 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の組成式中の組成比を示す x、y、z、w は原子%で、 $8.0 \leq x \leq 9.3$ 、 $0.5 \leq y \leq 5$ 、 $3 \leq z \leq 1.0$ 、 $3 \leq w \leq 7$  であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 11】 請求項 9 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の組成式中の組成比を示す x、y、z、w は原子%で、 $8.6 \leq x \leq 9.3$ 、 $0.5 \leq y \leq 3$ 、 $3 \leq z \leq 7$ 、 $3 \leq w \leq 5$  であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 12】 請求項 4 ないし 5 のいずれかに記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

$T_xM_yR_zB_wE_v$

ただし、T は Fe、Co、Ni のうち 1 種以上の元素を表わし、M は Zr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、W のうち 1 種以上の元素を表わし、R は希土類元素のうち 1 種以上の元素を表わし、B はホウ素を表わし、E は Cr、Al、Pt、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Cu、Ag、Au、Sc、Zn、Sn、Re、Mn のうち 1 種以上の元素を表わし、組成比を示す x、y、z、w、v は原子%で、 $5.0 \leq x$ 、 $0 \leq y \leq 1.5$ 、 $3 \leq z \leq 2.0$ 、 $2 \leq w \leq 2.0$ 、 $0 \leq v \leq 1.0$  である。

【請求項 13】 請求項 12 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の組成式中の組成比を示す x、y、z、w、v は原子%で、 $8.0 \leq x \leq 9.3$ 、 $0.5 \leq y \leq 5$ 、 $3 \leq z \leq 1.0$ 、 $3 \leq w \leq 7$ 、 $v \leq 5$  であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 14】 請求項 12 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の前記組成式中の組成比を示す x、y、z、w、v は原子%で、 $8.6 \leq x \leq 9.3$ 、 $0.5 \leq y \leq 3$ 、 $3 \leq z \leq 7$ 、 $3 \leq w \leq 5$ 、 $0.1 \leq v \leq 5$  であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 15】 請求項 4 ないし 5 のいずれかに記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

$T_xM_yR_zB_wG_u$

ただし、T は Fe、Co、Ni のうち 1 種以上の元素を表わし、M は Zr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、W のうち 1 種以上の元素を表わし、R は希土類元素のうち 1 種以上の元素を表わし、B はホウ素を表わし、G は C、Ga、Ge、P、Sb、In、B、As のうち 1 種以上の元素を表わし、組成比を示す x、y、z、w、u は原子%で、 $5.0 \leq x$ 、 $0 \leq y \leq 1.5$ 、 $3 \leq z \leq 2.0$ 、 $2 \leq w \leq 2.0$ 、 $0 \leq u \leq 1.0$  である。

【請求項 16】 請求項 15 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の前記組成式中の組成比を示す x、y、z、w、u は原子%で、 $8.0 \leq x \leq 9.3$ 、 $0.$

$5 \leq y \leq 5$ ,  $3 \leq z \leq 10$ ,  $3 \leq w \leq 7$ ,  $u \leq 5$ であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 17】 請求項 15 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の前記組成式中の組成比を示す  $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $u$  は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ 、 $0.5 \leq y \leq 3$ 、 $3 \leq z \leq 7$ 、 $3 \leq w \leq 5$ 、 $0.1 \leq u \leq 5$ であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 18】 請求項 4 ないし 5 のいずれかに記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

$T_x M_y R_z B_w E_v G_u$

ただし、 $T$  は  $Fe$ 、 $Co$ 、 $Ni$  のうち 1 種以上の元素を表わし、 $M$  は  $Zr$ 、 $Nb$ 、 $Ta$ 、 $Hf$ 、 $Ti$ 、 $V$ 、 $Mo$ 、 $W$  のうち 1 種以上の元素を表わし、 $R$  は希土類元素のうち 1 種以上の元素を表わし、 $B$  はホウ素を表わし、 $E$  は  $Cr$ 、 $Al$ 、 $Pt$ 、 $Ru$ 、 $Rh$ 、 $Pd$ 、 $Os$ 、 $Ir$ 、 $Cu$ 、 $Ag$ 、 $Au$ 、 $Sc$ 、 $Zn$ 、 $Sn$ 、 $Re$ 、 $Mn$  のうち 1 種以上の元素を表わし、 $G$  は  $C$ 、 $Ga$ 、 $Ge$ 、 $P$ 、 $Sb$ 、 $In$ 、 $B$ 、 $As$  のうち 1 種以上の元素を表わし、組成比を示す  $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$  は原子%で、 $50 \leq x$ 、 $0 \leq y \leq 15$ 、 $3 \leq z \leq 20$ 、 $2 \leq w \leq 20$ 、 $0 \leq v \leq 10$ 、 $0 \leq u \leq 10$  である。

【請求項 19】 請求項 18 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の前記組成式中の組成比を示す  $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$  は原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ 、 $0.5 \leq y \leq 5$ 、 $3 \leq z \leq 10$ 、 $3 \leq w \leq 7$ 、 $v \leq 5$ 、 $u \leq 5$ であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 20】 請求項 18 記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金の前記組成式中の組成比を示す  $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$  は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ 、 $0.5 \leq y \leq 3$ 、 $3 \leq z \leq 7$ 、 $3 \leq w \leq 5$ 、 $0.1 \leq v \leq 5$ 、 $0.1 \leq u \leq 5$ であることを特徴とする硬磁性合金圧密成形体。

【請求項 21】 非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、前記粉体を固化成形すると同時に複数方向に変形させることを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 22】 請求項 21 記載の圧密成形体の製造方法において、前記複数方向が固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であることを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 23】 非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、前記粉体をケースに充填した後、該ケースを変形させるとともに前記粉体を固化成形及び複数方向に変形させることを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 24】 非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、外部より前記粉体を加熱することにより該粉体を昇温させ、前記粉体の昇温中に加圧して該粉体

を固化成形するとともに複数方向に変形させることを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 25】 請求項 21 ないし 24 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記非晶質相が結晶化する温度またはその付近の温度で固化形成するとともに複数方向に変形させることを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 26】 請求項 21 ないし 25 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記粉体が合金粉体であり、該合金粉体を固化成形する際、該合金粉体の非晶質相が結晶化する温度領域で加圧することを特徴とする合金圧密成形体の製造方法。

【請求項 27】 請求項 21 ないし 26 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記粉体として、希土類元素のうちの 1 種以上からなる元素  $R$  が 4~20 原子%含まれる  $Fe$  系又は  $FeCo$  系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金粉体を用いることを特徴とする合金圧密成形体の製造方法。

【請求項 28】 請求項 21 ないし 27 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記粉体を固化成形すると同時にまたは引き続き  $500^\circ C$  ないし  $900^\circ C$  で熱処理を施すことを特徴とする圧密成形体の製造方法。

【請求項 29】 請求項 21 ないし 28 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体が平均結晶粒径  $100 \mu m$  以下の微細組織からなるソフト磁性相とハード磁性相との混相組織を主体とするように固化成形することを特徴とする硬磁性合金圧密成形体の製造方法。

【請求項 30】 請求項 21 ないし 29 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金粉体の成形時に変形方向に磁気異方性を付与することを特徴とする硬磁性合金圧密成形体の製造方法。

【請求項 31】 請求項 21 ないし 30 のいずれかに記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金を急冷することにより非晶質相からなる組織または平均結晶粒径  $100 nm$  以下の微細結晶質相を析出した組織とした後、該合金の粉体を応力下において結晶化または前記微細結晶質相を粒成長させるとともに高圧下で圧密化することを特徴とする硬磁性合金圧密成形体の製造方法。

【請求項 32】 請求項 21 ないし 31 のいずれかに記載の硬磁性合金圧密成形体の製造方法において、非晶質相を含み、結晶化したときに硬磁性を発現する合金粉体を結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形することを特徴とする硬磁性合金圧密成形体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、モーター、アクチュエータ、スピーカーなどに使用できる磁気性能に優れた硬磁性合金圧密成形体およびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来一般に、フェライト磁石よりも優れた性能を有する磁石材料として、Sm-Co焼結磁石、Fe-Nd-B焼結磁石、Fe-Nd-B急冷磁石などが知られており、またさらに高い性能を目指してFe-Sm-N系磁石などの新しい合金磁石の研究も数多くなされている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、これらの磁石材料においては、10原子%以上のNd、または8原子%以上のSmが必要であり、高価な希土類元素の使用量が多いことからフェライト磁石よりも製造コストが高くなってしまいうという欠点があった。またフェライト磁石は、これらの希土類磁石に比べてコストは低い、磁気特性が不十分であった。このため、低コストでフェライト磁石以上の硬磁性を示すような磁石材料の出現が望まれていた。

【0004】本発明者らは上記事情に鑑み、低コストで優れた硬磁気特性を備えた硬磁性材料について研究した結果、特開平9-143641号の明細書に記載されているようにFe、Co、Niのうち1種以上の元素を主成分とし、希土類元素のうちの1種または2種以上からなる元素Rと、Zr、Nb、Ta、Hfのうち1種または2種以上からなる元素Mと、ホウ素Bとを含み、組織のうちの50%以上、好ましくは60%以上が平均結晶粒径100nm以下の微細結晶相であり、残部が非晶質相であり、上記微細結晶相としてbcc-Feと、固溶元素を含むFe-B化合物および/またはFe<sub>14</sub>R<sub>2</sub>B<sub>1</sub>を主体とすることを特徴とする硬磁性材料を発明した。

【0005】しかし、上記の硬磁性材料は、例えば回転ドラムに溶湯を吹き付けて急冷して薄帯状に形成する製造方法、または溶湯を冷却用気体中に噴出して液滴状態で急冷して粉末状に形成する製造方法などによって製造されるものであるため、薄帯状もしくは粉末の形態でしか得られず、このままでは例えばモーター、アクチュエータ、スピーカーなどに使用し得る形状の塊状（バルク状）の磁石を得ることができなかった。

【0006】一般に粉末状の磁性体を成形してバルク状に加工する方法として、磁性体粉末をゴムやプラスチックなどの樹脂の結合材と混合して圧縮成形または射出成形により成形する方法が従来から行われ、これらの方法により製造された磁石は「ボンド磁石」として知られ、形状の自由度が高いために電子部品用などとして広く用いられている。しかし、これら従来のボンド磁石は、硬磁性材料間に結合材が介在し、全体の体積に対して磁石部分の密度も高くできないために、残留磁化（I<sub>r</sub>）が低下し、硬磁気特性が低く、また、樹脂を含むために材料強度が弱いという問題があった。なお、Sm-Co磁石でボンド磁石を作製することもできるが、上述の如く樹脂を含むために高密度化することができず、Sm-

Co磁石の優れた硬磁気特性を損なうことになる問題があった。

【0007】本発明は、上記の課題を解決するためになされたものであって、その目的は、高い成形密度で、材料強度及び硬質磁気性能にも優れた硬磁性合金圧密成形体およびその製造方法を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】本発明の合金圧密成形体は、上記事情に鑑みてなされたもので、希土類元素のうちの1種以上からなる元素Rが4～20原子%含まれるFe系又はFeCo系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金の粉体が固化成形されるとともに複数方向に変形されたものであることを特徴とする。先に記載の合金圧密成形体において、前記複数方向が固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であってもよい。先に記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体の相対密度が90%以上であることが好ましい。

【0009】本発明の硬磁性合金圧密成形体は、先に記載の合金圧密成形体において、前記前記合金粉体を固化成形して得られる成形体が平均結晶粒径100μm以下の微細組織からなるソフト磁性相とハード磁性相との混相組織を主体とすることを特徴とするものであってもよい。また、本発明の硬磁性合金圧密成形体は、先に記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体が成形時の変形方向に磁気異方性を示すものであることが好ましい。また、本発明の硬磁性合金圧密成形体は、先に記載の合金圧密成形体において、前記合金粉体を固化成形して得られる成形体が1kOe以上の保磁力を有するものであることが好ましい。

【0010】また、本発明の硬磁性合金圧密成形体は、先に記載の合金圧密成形体において、上記合金は急冷により非晶質相または平均結晶粒径100nm以下の微細結晶質相が析出した組織とされたものであり、該合金の粉体が応力下において結晶化または上記微細結晶質相が粒成長されるとともに圧密化されてなるものであってもよい。さらに、本発明の硬磁性合金圧密成形体は、先に記載の合金圧密成形体において、非晶質相を含み、結晶化したときに硬磁性を発現する合金の粉体が結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形されてなることを特徴とするものであってもよい。

【0011】先に記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであってもよい。

TxMyRzBw

ただし、TはFe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わし、MはZr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、Wのうち1種以上の元素を表わし、Rは希土類元素のうち1種以上の元素を表わし、Bはホウ素を表わし、組成比を示すx、y、z、wは原子%で、50 ≤ x、0

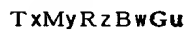
$y \leq 15$ ,  $3 \leq z \leq 20$ ,  $2 \leq w \leq 20$ である。次に、前記合金の組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ は原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 5$ ,  $3 \leq z \leq 10$ ,  $3 \leq w \leq 7$ でも良い。更に、前記合金の組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 3$ ,  $3 \leq z \leq 7$ ,  $3 \leq w \leq 5$ でも良い。

【0012】また、先に記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであっても良い。



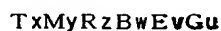
ただし、TはFe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わし、MはZr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、Wのうち1種以上の元素を表わし、Rは希土類元素のうち1種以上の元素を表わし、Bはホウ素を表わし、EはCr、Al、Pt、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Cu、Ag、Au、Sc、Zn、Sn、Re、Mnのうち1種以上の元素を表わし、組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ は原子%で、 $50 \leq x$ ,  $0 \leq y \leq 15$ ,  $3 \leq z \leq 20$ ,  $2 \leq w \leq 20$ ,  $0 \leq v \leq 10$ である。次に、前記合金の組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ は原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 5$ ,  $3 \leq z \leq 10$ ,  $3 \leq w \leq 7$ ,  $v \leq 5$ であつても良い。更に、前記合金の前記組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 3$ ,  $3 \leq z \leq 7$ ,  $3 \leq w \leq 5$ ,  $0.1 \leq v \leq 5$ であつても良い。

【0013】また、先に記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであつても良い。



ただし、TはFe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わし、MはZr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、Wのうち1種以上の元素を表わし、Rは希土類元素のうち1種以上の元素を表わし、Bはホウ素を表わし、GはC、Ga、Ge、P、Sb、In、B、Asのうち1種以上の元素を表わし、組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $u$ は原子%で、 $50 \leq x$ ,  $0 \leq y \leq 15$ ,  $3 \leq z \leq 20$ ,  $2 \leq w \leq 20$ ,  $0 \leq u \leq 10$ である。次に、前記合金の前記組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $u$ は原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 5$ ,  $3 \leq z \leq 10$ ,  $3 \leq w \leq 7$ ,  $u \leq 5$ であつても良い。更に、前記合金の前記組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $u$ は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 3$ ,  $3 \leq z \leq 7$ ,  $3 \leq w \leq 5$ ,  $0.1 \leq u \leq 5$ であつても良い。

【0014】また、先に記載の硬磁性合金圧密成形体において、前記合金は下記の組成式で表されるものであつても良い。



ただし、TはFe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わし、MはZr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、M

o、Wのうち1種以上の元素を表わし、Rは希土類元素のうち1種以上の元素を表わし、Bはホウ素を表わし、EはCr、Al、Pt、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Cu、Ag、Au、Sc、Zn、Sn、Re、Mnのうち1種以上の元素を表わし、GはC、Ga、Ge、P、Sb、In、B、Asのうち1種以上の元素を表わし、組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$ は原子%で、 $50 \leq x$ ,  $0 \leq y \leq 15$ ,  $3 \leq z \leq 20$ ,  $2 \leq w \leq 20$ ,  $0 \leq v \leq 10$ ,  $0 \leq u \leq 10$ である。次に、前記合金の前記組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$ は原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 5$ ,  $3 \leq z \leq 10$ ,  $3 \leq w \leq 7$ ,  $v \leq 5$ ,  $u \leq 5$ であつても良い。更に、前記合金の前記組成式中の組成比を示す $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、 $w$ 、 $v$ 、 $u$ は原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ ,  $0.5 \leq y \leq 3$ ,  $3 \leq z \leq 7$ ,  $3 \leq w \leq 5$ ,  $0.1 \leq v \leq 5$ ,  $0.1 \leq u \leq 5$ であつても良い。

【0015】次に、本発明の圧密成形体の製造方法は、非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、前記粉体を固化成形するとともに複数方向に変形させることを特徴とする製造方法である。先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記複数方向が固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であつても良い。本発明の圧密成形体の製造方法は、非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、前記粉体をケースに充填した後、該ケースを変形させるとともに前記粉体を固化成形及び複数方向に変形させることを特徴とする製造方法であつても良い。本発明の圧密成形体の製造方法は、非晶質相を主体とする粉体を固化成形するに際して、外部より前記粉体を加熱することにより該粉体を昇温させ、前記粉体の昇温中に加圧して該粉体を固化成形するとともに複数方向に変形させることを特徴とする製造方法であつても良い。

【0016】先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記非晶質相が結晶化する温度またはその付近の温度で固化成形するとともに複数方向に変形させることを特徴とする製造方法でも良い。また、本発明の合金圧密成形体の製造方法は、先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記粉体が合金粉体であり、該合金粉体を固化成形する際、該合金粉体の非晶質相が結晶化する温度領域で加圧することを特徴とする製造方法であつても良い。更に、本発明の合金圧密成形体の製造方法は、先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記粉体として、希土類元素のうちの1種以上からなる元素Rが4～20原子%含まれるFe系又はFeCo系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金粉体を用いることを特徴とする製造方法であつても良い。本発明の圧密成形体の製造方法においては、前記粉体を固化成形すると同時にまたは引き続いて500℃ないし900℃で熱処理を施すことが好ましい。

【0017】本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法

は、先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金粉末を固化成形して得られる成形体が平均結晶粒径  $100\mu\text{m}$  以下の微細組織からなるソフト磁性相とハード磁性相との混相組織を主体とするように固化成形することを特徴とする製造方法である。また、本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法は、先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金粉末の成形時に変形方向に磁気異方性を付与することを特徴とする製造方法であっても良い。また、本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法は、先に記載の圧密成形体の製造方法において、前記合金を急冷することにより非晶質相または平均結晶粒径  $10\text{nm}$  以下の微細結晶質相を析出した組織とした後、該合金の粉末を応力下において結晶化または上記微細結晶質相を粒成長させるとともに高圧下で圧密化することを中心とする製造方法であっても良い。更に、本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法は、先に記載の硬磁性合金圧密成形体の製造方法において、非晶質相を含み、結晶化したときに硬磁性を発現する合金粉末を結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形することを特徴とする製造方法であっても良い。

#### 【0018】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。本発明に係る合金圧密成形体は、基本的には、希土類元素のうち1種以上からなる元素Rが4～20原子%含まれるFe系又はFeCo系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金粉末が固化成形されるとともに複数方向に変形されたもの、あるいは上記合金粉末を固化成形して得られる成形体が平均結晶粒径  $100\mu\text{m}$  以下の微細組織からなるソフト磁性相とハード磁性相との混相組織を主体としてなるもの、あるいは上記合金は急冷により非晶質相からなる組織または平均結晶粒径  $100\text{nm}$  以下の微細結晶質相が析出した組織とされたものであり、しかも該合金の粉末が応力下において結晶化または上記結晶が粒成長させるとともに圧密化されてなるもの、あるいは上記合金は非晶質相を含む合金（非晶質合金）あるいは多少の結晶質相を含む非晶質合金であって、結晶化したときに硬磁性を発現するものであり、しかも該合金の粉末が結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形されてなるものである。

【0019】上記複数方向とは、例えば、上記固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であり、より具体的には、上記固化成形時の加圧方向と該加圧方向と直交する方向を挙げることができる。上記合金粉末を固化成形して得られる成形体の相対密度が90%以上であることが好ましい。上記成形体は、成形時の変形方向に磁気異方性を示すものであることが、すなわち、成形時の加圧方向および加圧方向と異なる方向にそれぞれ磁気異方性を示すものであることが、等方性の場合や加圧方向のみに磁気異方性を示す場合に比べてより高い残留磁化が得られ、これにより角型比を大きくでき、硬磁気特性

を向上できる点で好ましい。上記成形体は、 $1\text{kOe}$  以上の保磁力を有するものであることが好ましい。

【0020】このような合金圧密成形体を製造するには、まず、成型用の合金粉末（粉体）を用意する。この合金粉末は、希土類元素のうち1種以上からなる元素Rが4～20原子%含まれるFe系又はFeCo系よりなる合金を溶湯から急冷して薄帯状あるいは粉末状の状態で得る工程と、上記薄帯状のものは粉碎して粉末化する工程とにより得られる。ここで得られた合金粉末の粒径のうち、後工程に用いるものの粉末粒径としては、粒径  $35\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$  の範囲のものが好ましく、 $50$ ～ $100\mu\text{m}$  の範囲のものがより好ましい。この理由は、 $150\mu\text{m}$  を超える粉末粒径の大きいものは製造時に非晶質化が十分に成されていないおそれがあるためであり、 $30\mu\text{m}$  未満の粉末粒径の小さいものはミル等で粉碎して粉末化した場合に酸化の問題あるいはミルの内壁や粉碎刃の構成物質の一部などの異物が混入するおそれがあるためである。上記溶湯から非晶質合金あるいは多少の非晶質相を含む合金を得る方法としては、回転ドラムに上記溶湯を吹き付けて急冷して薄帯状に形成する方法、上記溶湯を冷却用気体中に噴出して液滴状態で急冷して粉末状に形成する方法、あるいはスパッタリングやCVD法による方法等を用いることができ、本発明に用いる非晶質合金は、これらのいずれの方法により作製されたものであってもよい。急冷により得られた合金薄帯あるいは合金粉末は、平均結晶粒径  $100\text{nm}$  以下の微細結晶質相が析出した組織か、あるいは非晶質相からなる組織から構成されている。

【0021】ついで、得られた合金粉末を固化成形するとともに複数方向に変形して合金圧密成形体を得る。ここでの固化成形は、合金粉末を加圧することにより行うことができる。また、ここでの複数方向としては、例えば、固化成形時の加圧方向と該加圧方向と異なる方向であり、より具体的には、固化成形時の加圧方向と該加圧方向と直交する方向を挙げることができる。

【0022】上記合金粉末を固化成形するとともに複数方向に変形させることにより、変形方向にそれぞれ磁気異方性が付与された合金圧密成形体、すなわち、加圧方向および加圧方向と異なる方向にそれぞれ磁気異方性が付与された合金圧密成形体を得ることができる。ここで磁気異方性が付与される磁性相としては、ハード磁性相である。このように合金圧密成形体に複数方向の磁気異方性が付与されていると、等方性の場合や加圧方向のみに磁気異方性を付与した場合に比べてより高い残留磁化（Ir）が得られ、これにより角型比を大きくでき、硬磁気特性を向上できる。上記合金粉末を固化成形する際には、応力下において合金粉末中の非晶質相を結晶化または微細結晶質相を粒成長させるとともに高圧力で圧密化することにより、上記平均結晶粒径  $100\text{nm}$  以下の微細結晶質相が析出した組織中にソフト磁性相又は準ハ



11

ード磁性相と、ハード磁性相との混相状態が形成されるか、あるいは上記非晶質相からなる組織中に平均結晶粒径  $100\text{ nm}$  以下の微細結晶質相が析出するとともに上記混相状態が形成される。

【0023】また、上記合金粉末を固化成形するとともに複数方向に変形させる際、上記合金粉末の非晶質相が結晶化する温度またはその付近の温度で行うことが好ましい。その理由は、非晶質合金粉末中の非晶質相は結晶化する温度になると軟化現象が顕著に発現し、このような軟化現象が起こると、非晶質合金粉末が加圧下で互いに圧着し一体化し、しかもこの非晶質合金粉末が一体化した非晶質合金粉末塊は軟らかくなっているため、所望方向に容易に変形が可能であり、従って、この軟化した非晶質合金を固化成形及び複数方向に変形させることにより、高密度（高い相対密度）の合金圧密成形体が得られるとともに該合金圧密成形体を加圧方向及び該加圧方向と異なる方向に容易に変形できる点で好ましい。また、合金粉末を固化成形する際、上記合金粉末の非晶質相が結晶化する温度領域で加圧することが好ましい。その理由は、上述したように非晶質合金粉末中の非晶質相は結晶化する温度になると軟化現象が顕著に発現し、このような軟化現象が起こると、非晶質合金粉末が加圧下で互いに圧着し一体化するので、この軟化した非晶質合金を固化成形することにより、高密度（高い相対密度）の合金圧密成形体が得られる。また、ここで合金粉末を加圧し始めるときの温度  $T_1$  としては、 $400\text{ K}$  ( $127^\circ\text{C}$ ) から  $700\text{ K}$  ( $427^\circ\text{C}$ )、好ましくは  $400\text{ K}$  ( $127^\circ\text{C}$ ) から  $600\text{ K}$  ( $327^\circ\text{C}$ )、より好ましくは  $450\text{ K}$  ( $177^\circ\text{C}$ ) から  $550\text{ K}$  ( $277^\circ\text{C}$ ) とすれば、角型比 ( $I_r/I_s$ ) が向上し、硬磁気特性を向上できる点で好ましい。

【0024】また、上記合金粉末を圧密化する際、結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形することが好ましい。ここで非晶質合金の結晶化反応時における軟化現象を利用して固化成形するのは、非晶質合金中の非晶質相を結晶化温度、またはその前段階で加熱する際に軟化現象が顕著に発現し、このような軟化現象が起こると、非晶質合金の粉末が加圧下で互いに圧着し一体化するので、この軟化した非晶質合金を固化成形することにより、高密度（高い相対密度）の合金圧密成形体が得られるからである。また、軟化現象の発現中に合金粉末を固化成形するに際しては、圧力、温度、成形時間などを調節することにより、成形後に得られる合金圧密成形体の相対密度が  $90\%$  以上、より好ましくは  $95\%$  以上となるように圧密することが好ましい。これにより、上記合金圧密成形体に硬磁性を発現させて得られる硬磁性合金圧密成形体が、きわめて緻密な組織構造を有する強固な焼結体となり、物性的に堅固であってしかも小型で強力な硬磁性を有する永久磁石となる。また、圧熱により固化成形するに際しては、強固な結合が得られ、しか

12

も強力な硬磁性を有する永久磁石が得られる点で非晶質相を  $50\%$  重量%以上含む合金を用いることが好ましい。

【0025】また、上記合金粉末を固化成形すると同時にまたは引き続き  $500^\circ\text{C}$  ないし  $900^\circ\text{C}$  で熱処理することが好ましく、より好ましくは応力下において上記合金粉末中の非晶質相を結晶化または微細結晶質相を粒成長させた後、圧密化と同時にまたは引き続き  $500^\circ\text{C}$  ないし  $900^\circ\text{C}$  で熱処理することが好ましい。このように  $500^\circ\text{C}$  ないし  $900^\circ\text{C}$  で熱処理することにより圧密成形体中に平均結晶粒径  $100\text{ nm}$  以下の微細結晶質相を主相として析出させることができる。これによって、硬磁性の磁気特性が発現する。ここでの熱処理温度（アニーリング温度）が  $500^\circ\text{C}$  未満であると、硬磁気特性を担う  $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相（Rは希土類元素のうちの1種以上の元素）の析出量が少ないため充分な硬磁気特性が得られず、好ましくない。一方、熱処理温度が  $900^\circ\text{C}$  を越えると、微細結晶相の粒成長がおこり、硬磁気特性が低下してしまうため好ましくない。また、特に、平均結晶粒径が  $100\text{ nm}$  以下である微細結晶相が合金圧密成形体の  $60\%$  体積%以上であり残部が非晶質相となるように条件を選び、しかも上記の微細結晶相中に  $\text{bcc-Fe}$  相または  $\text{bcc-FeCo}$  相と、 $\text{Fe}_{14}\text{R}_2\text{B}$  相（式中、Rは、希土類元素のうちの1種以上の元素を表す）とが生成するようにすれば、きわめて高い硬磁気特性を有する合金圧密成形体が得られる。

【0026】また、圧密成形体中に、保磁力  $1\text{ kOe}$  以下のソフト磁性相または準ハード磁性相、保磁力  $1\text{ kOe}$  以上のハード磁性相とがそれぞれ  $10\text{ vol}$ （体積）%以上含むような条件を選び、しかも上記保磁力が  $1\text{ kOe}$  以下のソフト磁性相または準ハード磁性相に  $\text{bcc}$ （体心立方構造）- $\text{Fe}$  相または  $\text{bcc-FeCo}$  相と、固溶元素を含む  $\text{Fe-B}$  の化合物と、非晶質相とが少なくとも析出し、かつ保磁力が  $1\text{ kOe}$  以上のハード磁性相に  $\text{Fe}_{14}\text{R}_2\text{B}$  相（式中、Rは、希土類元素のうちの1種以上の元素を表す）の単体が少なくとも析出するようにすれば、ソフト磁相とハード磁性相のそれぞれの特長を備えることができる点で好ましい。保磁力  $1\text{ kOe}$  以下のソフト磁性相が  $10\text{ vol}$ （体積）%未満であると、圧密成形体の保磁力は大きくなるがハード磁性相を構成するのに必要な希土類元素の濃度が高くなるため好ましくない。また、保磁力  $1\text{ kOe}$  以上のハード磁性相が  $10\text{ vol}$ （体積）%未満であると、硬磁性合金圧密成形体の保磁力が小さくなるため好ましくない。

【0027】また、上記構成の合金圧密成形体を作製する他の方法としては、外部より上記合金粉末を加熱することにより上記合金粉末を昇温させ、該合金粉末の昇温中に加圧して固化成形するとともに複数方向に変形させるようにしてもよい。上記合金粉末を用いて合金圧密成形体を作製する具体例としては、放電プラズマ焼結装置を用いて合金粉末に圧力を加えて成形するとともに複数

方向に変形させ、さらにこれと同時にパルス電流を合金粉末に印加して非晶質合金の結晶化温度またはその付近の温度で所定時間加熱することによって結晶化または粒成長して合金圧密成形体を得るか、あるいは合金粉末にパルス電流を印加して昇温していき、非晶質合金の結晶化温度付近の温度でパンチ等の加圧体で上下または左右から圧力を加えるとともに複数方向に変形させて合金圧密成形体を得るようにしてもよい。

【0028】図1は、本発明に係る合金圧密成形体を製造するために用いて好適な放電プラズマ焼結装置の一例の要部を示すもので、この例の放電プラズマ焼結装置は、WC等の超硬合金製のダイス1と、このダイス1の内部に挿入されるWC等の超硬合金製の上下パンチ2および下パンチ3と、上記ダイス1の外部に設けられたWC等の超硬合金製の外枠ダイス8と、下パンチ3を支え、後述するパルス電流を流す際の一方の電極ともなる基台4と、上パンチ2を下側に押し、パルス電流を流す他方の電極となる基台5と、上下のパンチ2、3に挟まれたS45C等の軟鋼製のケース10の温度を測定する熱電対7を主体として構成されている。ケース10は、合金粉末6を充填後、変形されるものであり、有底円筒状の本体10aと、円盤状の蓋体10bから構成されている。

【0029】図2に、上記プラズマ焼結装置の全体構造を示す。図2に示すプラズマ焼結装置Aは、住友炭鉄工業株式会社製のモデルSPS-2050と称される放電プラズマ焼結機の一つであり、図1に示す構造を要部とするものである。図2に示す装置においては、上部基盤11と下部基盤12を有し、上部の基盤11に接してチャンバ13が設けられ、このチャンバ13の内部に図1に示す構造の大部分が収納されて構成され、このチャンバ13は図示略の真空排気装置および雰囲気ガスの供給装置に接続されていて、上下のパンチ2、3の間に作られる空隙14を不活性ガス雰囲気などの所望の雰囲気下に保持して、ケース10内に充填された合金粉末6が不活性ガス雰囲気などの所望の雰囲気下に保持できるように構成されている。なお、図1と図2では通電装置が省略されているが、上下のパンチ2、3および基台4、5には別途設けた通電装置が接続されていてこの通電装置から図2に示すようなパルス電流をパンチ2、3および基台4、5を介して通電できるように構成されている。

【0030】図1と図2に示した放電プラズマ焼結装置を用いて目的とする硬磁性合金圧密成形体を作製するには、例えば、以下の工程による。まず、合金粉末6をケース10内に充填した後、ケース10を上下のパンチ2、3の間に配置する。このとき、ケース10の外側面とダイス1の内壁との間には、ケース10を加圧方向と異なる方向にも変形させるための隙間が開いていることが好ましい。チャンバ13の内部を真空引きするとともに、パンチ2、3で上下からケース10に圧力Pを加え

て該ケース10を加圧方向（上下方向）及び該加圧方向と直交する方向（左右方向）に変形させるとともにケース10内の合金粉末6を固化成形する。図3は、ケース10を加圧後の放電プラズマ焼結装置の要部構造を示す断面図である。また、これと同時に、パルス電流Eを合金粉末6に印加して非晶質合金の結晶化温度またはその付近の温度で所定時間加熱することによって、応力下で結晶化または粒成長すると硬磁性合金圧密成形体が得られる。この硬磁性合金圧密成形体は、ケース10内に入ったままであるので、放電プラズマ焼結装置Aからケース10を取り出した後、切削等によりケース10を除去すると、目的とする硬磁性合金圧密成形体が得られる。

【0031】ここで放電プラズマ焼結法を行う際の印加圧力は、200～1500MPa、好ましくは500～1000MPaで上記合金粉末6中の非晶質相を結晶化または微細結晶質相を粒成長するとともに成形することが好ましい。印加圧力が200MPa未満であると、ハード磁性相に異方性をつけることが困難であり、また、得られる合金圧密成形体の空隙率が大きく、成形密度が小さくなるため好ましくない。印加圧力が1500MPaを越えると、高温でWC製のダイスの強度が不足するため好ましくないが、ダイスとして更に高い強度の合金製のものを用い、プラズマ焼結装置の加圧機構を強力にするならば更に高い圧力を用いても良いのは勿論である。ここで合金粉末6を加熱する際の昇温速度は、10℃/分（0.17℃/分秒）以上、好ましくは20℃/分（0.33℃/分）以上とされる。昇温速度が10℃/分未満であると、結晶粒が粗大化するため非晶質相中あるいはソフト磁性相中において近接するハード磁性相どうしの磁気的交換結合力が弱まり、硬磁気特性が劣化するため好ましくない。

【0032】放電プラズマ焼結法を行う際に、その焼結温度をTsとし、非晶質合金の結晶化開始温度をTxとした場合に、 $T_x - 200^\circ\text{C} \leq T_s \leq T_x + 200^\circ\text{C}$ の関係を満足する温度範囲で焼結することが好ましい。焼結温度Tsが $T_x - 200^\circ\text{C}$ 未満であると、温度が低すぎて、結晶化し難くなり、結晶化温度近傍における軟化現象を利用できなくなり、高密度焼結体を作製できないため好ましくない。焼結温度Tsが $T_x + 200^\circ\text{C}$ を越えると微細結晶相が粒成長することにより硬磁気特性が劣化し、好ましくない。このような放電プラズマ装置を用いた放電プラズマ焼結法においては、通電電流により合金粉末6を所定の速度で素早く昇温することができ、また、通電電流の値に応じて合金粉末6の温度を厳格に管理できるので、ヒータによる加熱などよりも遥かに正確に温度管理ができ、これにより予め設計した通りの理想に近い条件で焼結ができる。応力下において上記合金粉末6中の非晶質相を結晶化または微細結晶質相を粒成長させるとともに500℃（773K）ないし900℃（1173K）で加熱（熱処理）することにより合金圧

密成形体中に平均結晶粒径100nm以下の微細結晶質相を主相として析出させる。これによって、硬磁性の磁気特性が発現する。

【0033】上記の方法により得られた硬磁性合金圧密成形体は、成形時の加圧方向および該加圧方向と直交する方向にそれぞれ磁気異方性を示すものである。等方性の場合や加圧方向のみに磁気異方性を付与した場合に比べてより高い残留磁化(I<sub>r</sub>)が得られ、これにより角型比(I<sub>r</sub>/I<sub>s</sub>)を大きくでき、強力な永久磁石成形体とすることができる。さらに、この硬磁性合金圧密成形体は、微細組織を実現することにより得られる微細なソフト磁性相とハード磁性相とを結合させた交換結合特性を示すものであり、かつFe濃度が従来の希土類磁石より高いため、残留磁化が0.8T以上のものが得られる。また、この硬磁性合金圧密成形体は、非晶質合金粉末が加圧下に互いに圧着し、一体化されたものである。磁性体粉末を結合材を用いて結着した従来のボンド磁石に比べて物性的に堅固であってしかも小型で強力な硬磁性を有する永久磁石となる。また、本発明の硬磁性合金圧密体は、上述のように、粉末から成形するので各種の形状に成形することができる。

【0034】上述のプラズマ焼結処理を行い、印加圧力200~1500MPa、好ましくは500~1000MPaで結晶化または粒成長するとともに固化成形することで、充分な密度のバルク状に、例えば、90%以上の相対密度を有するバルク状に容易に加工することができる。以上のことから、本発明の硬磁性合金圧密成形体は、モーター、アクチュエータ、スピーカーなどの各種の装置に使用される永久磁石として有用であり、製造コストの低減を図ることができる。

【0035】次に、本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造に用いることができる非晶質合金について詳しく説明する。本発明に係る硬磁性合金圧密成形体に用いられる合金は以下の組成式で表すことができる。

$T_xM_yR_zB_w$

上記組成式中のTは、Fe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わす。これらの元素Tは、本発明に係る硬磁性材料の主成分であり、磁性を担う元素であるため、元素Tの組成比xは50原子%以上である。元素Tの組成比xを増加させると、それに伴って飽和磁化(I<sub>s</sub>)が増加する。0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を実現するためには、飽和磁化(I<sub>s</sub>)が少なくとも1.1Tは必要であり、これを満たすには元素Tの組成比xは80原子%以上であるのが望ましく、より好ましくは86原子%以上である。また、良好な硬磁気特性を得るためには93原子%以下とするのが好ましい。本発明の硬磁性合金圧密成形体においては、元素Tの少なくとも一部としてFeが含まれていることが必要である。

【0036】上記組成式中のMは、Zr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、Wのうち1種以上の元素を表わ

し、これらの元素Mは非晶質形成能が高いものである。本発明に係る硬磁性合金において、元素Mを添加することにより、元素R(希土類元素)が低濃度の場合でも非晶質相を形成することができる。元素R置換で元素Mの組成比yを増加させると、それに伴って残留磁化(I<sub>r</sub>)は増加するが、保磁力(iHc)が低下し、硬磁気特性から軟磁気特性へと変化する。また、磁性を担う元素T置換で元素Mを増加させると飽和磁化(I<sub>s</sub>)、残留磁化(I<sub>r</sub>)の減少が生じる。従って、良好な硬磁気特性を得るために、元素Mの組成比yは0原子%以上15原子%以下の範囲とするのが好ましく、0.5原子%以上5原子%以下の範囲であることがより好ましい。また、0.5原子%以上3原子%以下とすると更に好ましい。更に、非晶質相を形成し易くするためには、1原子%以上添加すると更に好ましい。

【0037】上記組成式中のRは、希土類元素(Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、およびLu)のうちの1種以上の元素を表わす。元素RとFeとBを含む非晶質を主相とする合金を773~1173K(500~900℃)の範囲の適切な温度で加熱したときに析出する金属間化合物R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bは、本発明の硬磁性合金圧密成形体に優れた硬磁気特性を付与するものである。元素Rの組成比zを増加させると、それに伴って飽和磁化(I<sub>r</sub>)が減少する。0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を得るためには、飽和磁化(I<sub>s</sub>)が少なくとも1.1Tは必要であり、これを満たすためには元素Rの組成比zは20原子%以下であることが望ましい。また元素Rは非晶質を形成し易い元素であり、元素Rの組成比zが小さ過ぎると良好な非晶質相または微細結晶相を得られないため、元素Rの組成比zとしては3原子%以上とするのが望ましく、高い飽和磁化(I<sub>r</sub>)と保磁力(iHc)を両立させるためには、10原子%以下、更に好ましくは7原子%以下とすると良い。さらに元素Rの一部または全部をNdおよび/またはPrで構成すると、さらに高い硬磁気特性が得られる。

【0038】上記組成式中のBは、非晶質を形成し易い元素である。また、元素RとFeとBを含む非晶質相を773~1173K(500~900℃)の範囲の適切な温度で熱処理したときに析出する化合物R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bは、本発明の硬磁性合金圧密成形体に硬磁気特性を付与するものである。良好な非晶質相、または微細結晶質相を得るためには、Bの濃度を2原子%以上、より好ましくは3原子%以上とするのが望ましいが、Bの組成比wの増加に伴って飽和磁化(I<sub>s</sub>)、残留磁化(I<sub>r</sub>)、および保磁力(iHc)が減少するので、良好な硬磁気特性を得るために、Bの組成比wを20原子%以下、より好ましくは7原子%以下、更に好ましくは5原子%以下とするのが望ましい。また、FeとBを含む非晶質相は773~1173K(500℃~900℃)

の範囲の適切な温度に加熱するとき、Fe-Bの化合物を析出する。

【0039】また、本発明の硬磁性合金圧密成形体には、Cr、Al、Pt、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Cu、Ag、Au、Sc、Zn、Sn、Re、Mnのうち1種以上の元素Eが添加されていてもよく、その場合に用いられる合金は、下記の組成式で表すことができる。TxMyRzBwEvこの場合の磁性を担う元素Tの組成比xは、飽和磁化(I<sub>s</sub>)を増加させる点から好ましくは50原子%以上、より好ましくは80原子%以上93原子%以下の範囲であり、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)と高い保磁力(iH<sub>c</sub>)の両立を実現するためには、0.6原子%以上93原子%以下の範囲とするのが好ましい。上記組成式中の元素Mの組成比yは、良好な硬磁気特性を得るために好ましくは0原子%以上15原子%以下、より好ましくは0.5原子%以上5原子%以下、さらに好ましくは0.5原子%以上3原子%以下の範囲であり0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を実現するためには、1原子%以上3原子%以下の範囲とすることが好ましい。なお、より高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を得るためには組成比を0.5原子%以上1原子%以下としても良い。

【0040】上記組成式中の元素Rの組成比zは、本発明の硬磁性合金圧密成形体に優れた硬磁気特性を付与するため、良好な非晶質相または微細結晶質相を得るために、好ましくは3原子%以上20原子%以下、より好ましくは3原子%以上10原子%以下の範囲であり、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を実現するためには、0.8原子%以上7%以下の範囲とするのが好ましい。上記組成式中のBの組成比wは、良好な非晶質相または微細結晶質相を得るために、2原子%以上とすることが望ましく、より好ましくは3原子%以上である。また、良好な硬磁気特性を得るためには、Bの組成比wは、好ましくは20原子%以下、より好ましくは7原子%以下、更に好ましくは5原子%以下とされる。また、FeとBを含む非晶質相は773~1173K(500℃~900℃)の範囲内の適切な温度に加熱するとFe-Bの化合物を析出する。上記組成式中の元素Eは、結晶組織の微細化を促進させるためと、硬磁性合金圧密成形体の耐食性及び耐摩耗性を向上させるために添加されるものである。元素Eの組成比vは0原子%以上10原子%以下であることが好ましい。ただし、元素Eの組成比vが高過ぎると硬磁気特性が劣化するので、元素Eの組成比vは好ましくは5原子%以下、より好ましくは0.1原子%以上5原子%以下とされる。また、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を達成するためには、元素Eを添加しない方が好ましい。

【0041】更に、本発明の硬磁性合金圧密成形体には、C、Ga、Ge、P、Sb、In、B、Asのうち1種以上の元素Gが添加されていてもよく、この場合に

用いられる合金は、下記の組成式で表すことができる。TxMyRzBwGuこの場合の磁性を担う元素Tの組成比xは、飽和磁化(I<sub>s</sub>)を増加させる点から好ましくは50原子%以上、より好ましくは80原子%以上93原子%以下の範囲であり、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)と高い保磁力(iH<sub>c</sub>)を得るには86原子%以上93原子%以下とするのが好ましい。上記組成式中の元素Mの組成比yは、良好な硬磁気特性を得るために、好ましくは0原子%以上15原子%以下、より好ましくは0.5原子%以上5原子%以下の範囲であり、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を実現するためには、0.5原子%以上3原子%以下の範囲とすることが好ましい。なお、より高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を得るためには、組成比を0.5原子%以上1原子%以下としても良い。

【0042】上記組成式中の元素Rの組成比zは、硬磁性材料に優れた硬磁気特性を付与し、良好な非晶質相または微細結晶質相を得るために、好ましくは3原子%以上20原子%以下、より好ましくは3原子%以上10原子%以下とするのが良く、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を実現するためには、3原子%以上7%以下の範囲とするのが好ましい。上記組成式中のBの組成比wは、良好な非晶質相または微細結晶質相を得るために2原子%以上とするのが望ましいが、良好な硬磁気特性を得るためには、Bの組成比wを2原子%以上20原子%以下、より好ましくは3原子%以上7原子%以下、更に好ましくは3原子%以上5原子%以下とするのが望ましい。上記組成式中の元素Gは、析出するソフト磁性相若しくは準ハード磁性相と、ハード磁性相の結晶化温度を制御するために添加されるものであり、この元素Gを添加することにより最適な微細結晶複相組織を実現できる。元素Gの組成比uは、0原子%以上10原子%以下であることが好ましい。ただし、組成比uが高過ぎると飽和磁化(I<sub>s</sub>)が極端に低下するので、組成比uは、より好ましくは5原子%以下、更に好ましくは0.1原子%以上5原子%以下である。また、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を達成するためには、元素Gを添加しない方が良い。

【0043】更にまた、本発明の硬磁性合金圧密成形体には、上述の元素Eと元素Gとが同時に添加されていても良く、この場合に用いられる合金は、下記の組成式で表すことができる。

TxMyRzBwEvGu

ここで、TはFe、Co、Niのうち1種以上の元素を表わし、MはZr、Nb、Ta、Hf、Ti、V、Mo、Wのうち1種以上の元素を表わし、Rは希土類元素のうち1種以上の元素を表わし、EはCr、Al、Pt、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Cu、Ag、Au、Sc、Zn、Sn、Re、Mnのうち1種以上の元素を表わし、GはC、Ga、Ge、P、Sb、In、

B、Asのうち1種以上の元素を表わし、Bはホウ素を表し、組成比を示すx、y、z、w、v、uが原子%で、 $50 \leq x$ 、 $0 \leq y \leq 15$ 、 $3 \leq z \leq 20$ 、 $2 \leq w \leq 20$ 、 $0 \leq v \leq 10$ 、 $0 \leq u \leq 10$ であることが、飽和磁化(I<sub>s</sub>)を増加できること、良好な硬磁気特性が得られること、良好な非晶質相または微細結晶質相が得られること、結晶組織の微細化を促進できると共に硬磁性合金圧密成形体の耐食性及び耐摩耗性を向上できること、最適な微細結晶複相組織を実現できる点で好ましい。

【0044】また、飽和磁化(I<sub>s</sub>)を増加できること、良好な硬磁気特性が得られること、良好な非晶質相または微細結晶質相が得られること、硬磁気特性が劣化することなく結晶組織の微細化を促進でき、硬磁性合金圧密成形体の耐食性及び耐摩耗性を向上できること、飽和磁化(I<sub>s</sub>)が極端に低下することなく最適な微細結晶複相組織を実現できる点で、組成比を示すx、y、z、w、v、uは原子%で、 $80 \leq x \leq 93$ 、 $0.5 \leq y \leq 5$ 、 $3 \leq z \leq 10$ 、 $3 \leq w \leq 7$ 、 $v \leq 5$ 、 $u \leq 5$ であることが好ましい。更に、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)と高い保磁力(iH<sub>c</sub>)を得られること、良好な硬磁気特性が得られること、硬磁気特性が劣化することなく結晶組織の微細化を促進でき、硬磁性合金圧密成形体の耐食性及び耐摩耗性を向上できること、飽和磁化(I<sub>s</sub>)が極端に低下することなく最適な微細結晶複相組織を実現できる点で、組成比を示すx、y、z、w、v、uが原子%で、 $86 \leq x \leq 93$ 、 $0.5 \leq y \leq 3$ 、 $3 \leq z \leq 7$ 、 $3 \leq w \leq 5$ 、 $0.1 \leq v \leq 5$ 、 $0.1 \leq u \leq 5$ であることが好ましい。また、0.8T以上の高い残留磁化(I<sub>r</sub>)を達成するためには、元素E及び元素Gを添加しない方がよい。

【0045】本発明の硬磁性合金圧密成形体に用いる上記合金において元素T中にFe以外にCoが含まれるようにすれば、パーミアンス係数が2以上となる形状で使用したときの磁化の温度係数の絶対値、パーミアンス係数が10以上となる形状で使用したときの磁化の温度係数の絶対値、及び保磁力の温度係数の絶対値を小さくすることができる点で好ましい。その理由は、元素T中にCoが含まれているとキュリー温度が上昇するので、磁化や保磁力の温度変化が小さくなり、また、磁化の角型比が高くなるため磁気特性の温度変化が小さくなり、さらに、このCoはbcc-Fe相にも含まれるので、残留磁化の温度変化が小さくなるからである。Coの含有量は、多過ぎると磁気特性を劣化させるので、好ましくは50原子%以下、より好ましくは0.5原子%以上30原子%以下、さらに好ましくは0.5原子%以上20原子%以下の範囲とされ、合金の組成や熱処理条件等に応じて適宜設定するのが好ましい。

【0046】また、本発明の硬磁性材料において、Siを元素T置換で添加すれば、磁気特性、特に保磁力(i

H<sub>c</sub>)、および最大磁気エネルギー積((BH)max)をさらに向上させることができ、また、パーミアンス係数が2以上となる形状で使用したときの磁化の温度係数の絶対値、特に、パーミアンス係数が10以上となる形状で使用したときの磁化の温度係数の絶対値を低くすることができる。Siの添加量は、多過ぎると元素Tの組成比が低くなるために硬磁性材料の磁気特性がかえって低下するので、好ましくは0.5原子%以上5原子%以下、より好ましくは0.5原子%以上3原子%以下の範囲とされ、合金の組成や熱処理条件等に応じて適宜設定するのが好ましい。このようにして保磁力(iH<sub>c</sub>)および温度特性が改善された硬磁性材料は、特に、小型モータ用磁石、センサとして好適に用いられる。

【0047】本発明の合金圧密成形体を製造するに際して、特に好ましい非晶質合金の例としては、例えば、Fe<sub>88</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>86</sub>Pr<sub>7</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>86</sub>Nd<sub>7</sub>Zr<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>86</sub>Nd<sub>9</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>84</sub>Pr<sub>11</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>88</sub>Pr<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>88</sub>Nd<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>86</sub>Nd<sub>7</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>89</sub>Pr<sub>4</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>89</sub>Nb<sub>2</sub>Nd<sub>4</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>89</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>4</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>90</sub>Nb<sub>2</sub>Nd<sub>5</sub>B<sub>3</sub>、Fe<sub>90</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>5</sub>B<sub>3</sub>、Fe<sub>89</sub>Nb<sub>2</sub>Nd<sub>5</sub>B<sub>4</sub>、Fe<sub>89</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>5</sub>B<sub>4</sub>、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>76</sub>Co<sub>10</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>73</sub>Co<sub>15</sub>Nb<sub>2</sub>Nd<sub>5</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>87</sub>Nb<sub>3</sub>Nd<sub>5</sub>B<sub>5</sub>、Fe<sub>76</sub>Co<sub>10</sub>Nb<sub>2</sub>Nd<sub>7</sub>B<sub>5</sub>を挙げることができる。これらの組成の合金を用いれば、熱圧処理によって強固な合金圧密成形体が形成され、生成した微細結晶相中にbcc-Fe相とFe<sub>14</sub>R<sub>2</sub>B相とが形成され、硬磁性特性に優れた永久磁石を得ることができる。

【0048】

【実施例】以下、実施例により更に具体的に説明する。

(非晶質合金の調製1) まず、アーク溶解法によりFe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>なる組成を有する合金のインゴットを作製し、Ar雰囲気中において回転しているCuロール上へこの合金の溶湯を吹きつけることにより約20μmの厚さの急冷薄帯を得た。得られた急冷薄帯をロータースピードミルを用いて粉碎し、粒径37μm~105μmであり、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>なる組成の非晶質合金粉末を得た。

【0049】(合金圧密成形体の製造) 次に、図1、図2に示した放電プラズマ焼結装置を用い、先に得られたFe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub>粉末をケース10内に充填後、このケース10を上下のパンチ2、3の間に配置し、チャンバ13の内部の雰囲気圧が $3 \times 10^{-3}$ Pa以下となるように真空引きするとともに、パンチ2、3で上下から圧力を加えると同時にパルス電流を印加して加熱することによって、結晶化または粒成長するとともに固化成形を行い、かつこれと同時にケース10を加圧方向および加圧方向と直交する方向に変形させて合金圧密成形体試料を得た。焼結条件は、焼結圧力Psを636MPa、圧力をかけ始めるときの温度T<sub>1</sub>を300K(2

7°C) ~ 723 K (450°C)、昇温速度を 1.8 K/秒、焼結温度  $T_s$  を 873 K (600°C)、この焼結温度での保持時間を 180 秒間 (3 分間) とした。

【0050】(測定) 得られた合金圧密成形体試料について、成形体の密度および成形時の加圧方向と平行方向に測定した時の磁気特性 (飽和磁化 ( $I_s$ )、残留磁化  $I_r$  (T)、角型比 ( $I_r/I_s$ )、および保磁力 ( $H_cj$ )、最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max</sub>) の  $T_i$  依存性を調べた。その結果を図 4 及び図 5 に示す。なお、測定中、飽和磁化 ( $I_s$ ) と呼ぶものは、印加磁場 5 T (テスラ) を加えて磁化曲線を測定した時に得られる最大磁化を示している。

【0051】図 4 から図 5 に示した結果から、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> 粉末を固化成形するとともに加圧方向および加圧方向と直交する方向に変形させる際、加圧し始めるときの温度  $T_i$  を高くするにつれて得られる合金圧密成形体試料の密度は小さくなっており、また、温度  $T_i$  を高くするにつれて飽和磁化は小さくなっているが、残留磁化は上記  $T_i$  が 523 K (250°C) 付近にピークが認められ、また、角型比および最大磁気エネルギー積も上記  $T_i$  が 523 K (250°C) 付近にピークが認められる。また、 $H_cj$  については、上記  $T_i$  が 623 K (350°C) を超えると、急激に上昇しており、これは非晶質相中あるいはソフト磁性相中において近接するハード磁性相どうしの磁氣的交換結合力が弱まるためであると考えられる。以上のことから Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> 粉末を固化成形するとともに加圧方向および加圧方向と直交する方向に変形させる際、加圧し始めるときの温度  $T_i$  としては、400 K (127°C) から 623 K (350°C)、好ましくは 473 K (200°C) から 573 K (300°C)、より好ましくは 523 K (250°C) とすれば、角型比 ( $I_r/I_s$ ) が向上し、硬磁気特性を向上できることがわかる。

【0052】次に、先に得られた Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> なる組成の非晶質合金粉末試料を上記ケース 10 内に入れ、該ケース 10 を上記放電プラズマ焼結装置のパンチ 2、3 間に配置し、昇温速度 50 K/分 (50°C/分)、焼結温度 ( $T_s$ ) 873 K (600°C)、焼結圧力 ( $P_s$ ) 63.6 MPa で焼結するとともに加圧方向 (図 6 に示す Z 方向) および加圧方向と直交する方向 (図 6 に示す X および Y 方向) に変形させて得られたバルク試料について、成形時加圧方向 (図 6 に示す Z 方向) で測定した最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max-parallel</sub>) と、成形時加圧方向と直角方向 (図 6 に示す X または Y 方向) で測定した最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub>) を求め、最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max-parallel</sub>) を最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub>) で割った値「( $BH$ )<sub>max-parallel</sub>) / ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub>)

r)」を異方性の程度を表す指標とし、その値の加圧し始めるときの温度  $T_i$  依存性を図 7 に示す。

【0053】図 7 に示す結果から加圧し始めるときの温度  $T_i$  が 473 K ~ 550 K では ( $BH$ )<sub>max-parallel</sub>) / ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub>) が 1.2 以上と異方性の程度が大きいものが得られ、温度  $T_i$  が 523 K (250°C) では ( $BH$ )<sub>max-parallel</sub>) / ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub>) が約 1.5 とより異方性の程度が大きいもののものが得られる。

【0054】図 8 の A は、先に得られた Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> なる組成の非晶質合金粉末試料を上記ケース 10 内に入れ、該ケース 10 を上記放電プラズマ焼結装置のパンチ 2、3 間に配置し、昇温速度 50 K/分 (50°C/分)、焼結温度 873 K で焼結するとともに変形させたときの時間 (秒) と試料の温度および圧力を測定した結果を示す図である。ここでの圧力は上記パンチに加える力を上記ケースの面積 (力をうける部分) で割った値として求めた。図 8 の B は、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> なる組成の非晶質合金粉末を上記ケース 10 内に入れ、該ケース 10 を上記放電プラズマ焼結装置のパンチ 2、3 間に配置し、昇温速度 50 K/分 (50°C/分)、焼結温度 873 K で焼結したときの時間 (秒) と試料の温度およびダイス変位量  $X$  を測定した結果を示す図である。ここでの試料の温度は、ダイス側面に取り付けた熱電対 7 により測定しており、また、ダイス変位量  $X$  は図 1 に示すようにダイスの上下のパンチ 2、3 間の距離で定義をした。

【0055】図 8 の A に示した結果から明らかなように、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> なる組成の非晶質合金粉末試料は、時間の経過に伴い試料の温度は上昇しているが、圧力はある時間 (この例では 600 秒) まではフラットな値であるが、温度が  $T_i$  となる時間を超えると急激に増加することがわかる。また、図 8 の B に示した結果から明らかなように、Fe<sub>66</sub>Co<sub>20</sub>Nb<sub>2</sub>Pr<sub>7</sub>B<sub>5</sub> なる組成の非晶質合金粉末試料は、時間の経過に伴い試料の温度は上昇しているが、ダイス変位量  $X$  は 600 秒付近を境に減少が止まり、逆に増加しており、700 秒でほぼ一定値となる。これは、昇温中のある温度  $T_i$  で圧力をかけることにより粉末が圧密化することで、ダイス変位量  $X$  が増加する事を意味する。また圧力をかけ始めるときの温度  $T_i$  を、上記組成の非晶質合金粉末の結晶化温度付近の 673 K (400°C) 付近とすることにより、非晶質合金がもつ軟化現象を利用して固化成形することができ、密度の高い合金圧密成形体を製造することが可能である。

【0056】

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、希土類元素のうちの 1 種以上からなる元素 R が 4 ~ 20 原子%含まれる Fe 系又は Fe-Co 系よりなり、急冷により非晶質相を含む組織とされた合金の粉体を固化成形す

23

るとともに複数方向に変形することにより、等方性の場合や加圧方向のみに磁気異方性を付与した場合に比べてより高い残留磁化 ( $I_r$ ) が得られ、これにより角型比 ( $I_r/I_s$ ) を大きくでき、強力な永久磁石成形体となる硬磁性合金圧密成形体を得ることができる。さらに、この硬磁性合金圧密成形体は、微細組織を実現することにより得られる微細なソフト磁性相とハード磁性相とを結合させた交換結合特性を示すものであり、かつ Fe 濃度が従来の希土類磁石より高いため、残留磁化が 0.8 T 以上のものが得られる。

【0057】また、この硬磁性合金圧密成形体は、非晶質合金粉末が加圧下に互いに圧着し、一体化されたものである。磁性体粉末を結合材を用いて結着した従来のボンド磁石に比べて物性的に堅固であってしかも小型で強力な硬磁性を有する永久磁石となる。また、本発明の硬磁性合金圧密体は、上述のように、粉末から成形するので各種の形状に成形することができる。また、上記合金粉末を固化成形するに際して、結晶化反応時に起こる軟化現象を利用して固化成形し、この時、圧力、温度、成形時間などを調節することにより、相対密度が 90% 以上の硬磁性合金圧密成形体を得ることができる。以上のことから、本発明によれば、モーター、アクチュエータ、スピーカーなどの各種の装置に使用される永久磁石として有用な硬磁性合金圧密成形体を得ることができ、製造コストの低減を図ることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法を実施するために用いる放電プラズマ焼結装置の一例の要部構造を説明するための図であり、ケースを加圧する前の状態を示す断面図である。

【図 2】 本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法を実施するために用いる放電プラズマ焼結装置の一例の全体構成を示す正面図である。

24

【図 3】 本発明の硬磁性合金圧密成形体の製造方法を実施するために用いる放電プラズマ焼結装置の一例の要部構造を説明するための図であり、ケースを加圧後の状態を示す断面図である。

【図 4】 本発明に係わる合金圧密成形体試料について、成形体の密度および成形時の加圧方向と平行方向に測定した時の磁気特性の  $T_i$  依存性を示す図である。

【図 5】 本発明に係わる合金圧密成形体試料について、成形時の加圧方向と平行方向に測定した時の磁気特性の  $T_i$  (加圧し始めるときの温度) 依存性を示す図である。

【図 6】 合金圧密成形体を製造する際に、焼結圧力付加方向を説明するための斜視図である。

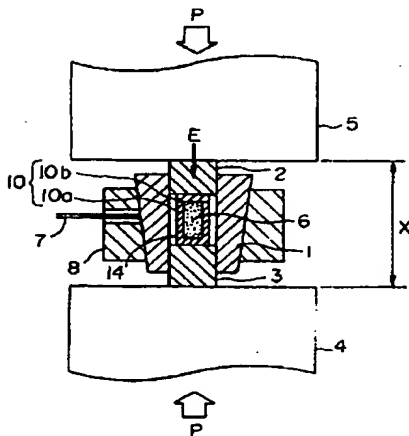
【図 7】 成形時加圧方向 (Z 方向) で測定した試料の最大磁気エネルギー積 ( $BH$ )<sub>max-parallel</sub> を成形時加圧方向と直角な方向 (X または Y 方向) で測定した ( $BH$ )<sub>max-perpendicular</sub> で割った値の  $T_i$  (加圧し始めるときの温度) 依存性を示す図である。

【図 8】 A は、 $Fe_{66}Co_{20}Nb_2Pr_7B_5$  なる組成の非晶質合金粉末試料をケースに入れて焼結するとともに変形させたときの時間 (秒) と、試料の温度および圧力を測定した結果を示す図であり、B は、 $Fe_{66}Co_{20}Nb_2Pr_7B_5$  なる組成の非晶質合金粉末試料をケースに入れて焼結するとともに変形させたときの時間 (秒) と、試料の温度およびダイス変位量 X (mm) を測定した結果を示す図である。

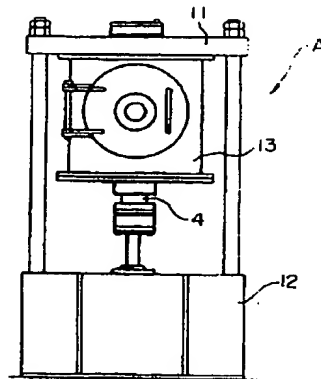
#### 【符号の説明】

A...放電プラズマ焼結装置、1...ダイス、2...上パンチ、3...下パンチ、4、5...基台、6...合金粉末 (合金粉体)、7...熱電対、8...外枠ダイス、10...ケース、10a...本体、10b...蓋体、P...圧力、E...パルス電流、11...上部基盤、12...下部基盤、13...チャンバ、14...空隙。

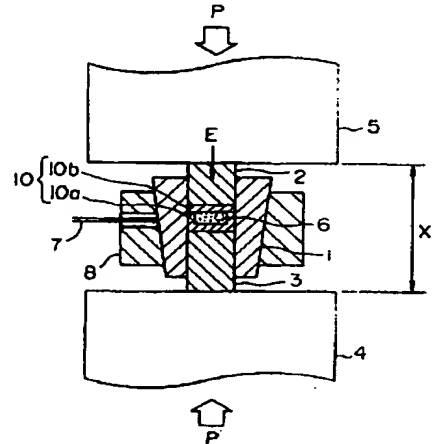
【図 1】



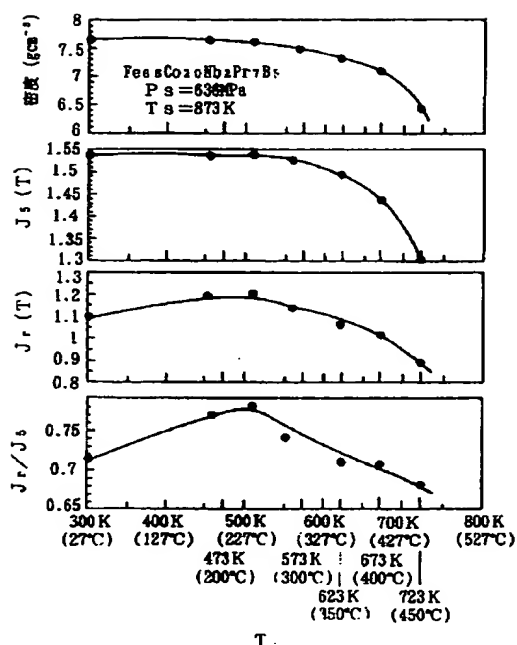
【図 2】



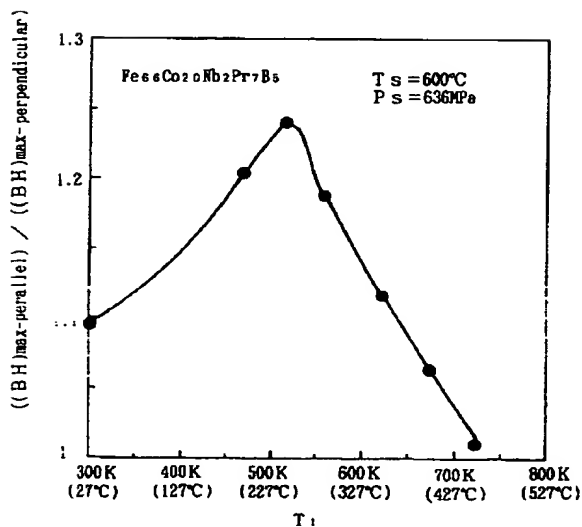
【図 3】



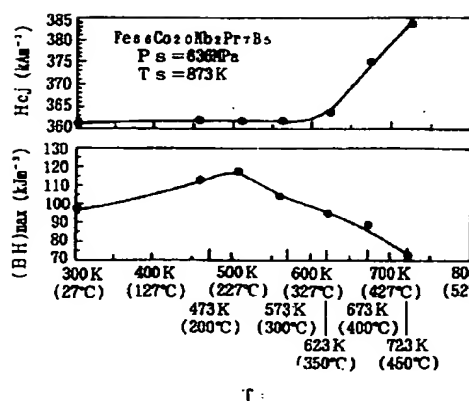
【図4】



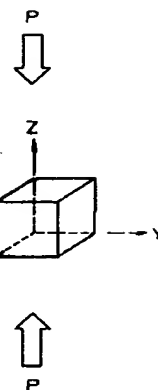
【図7】



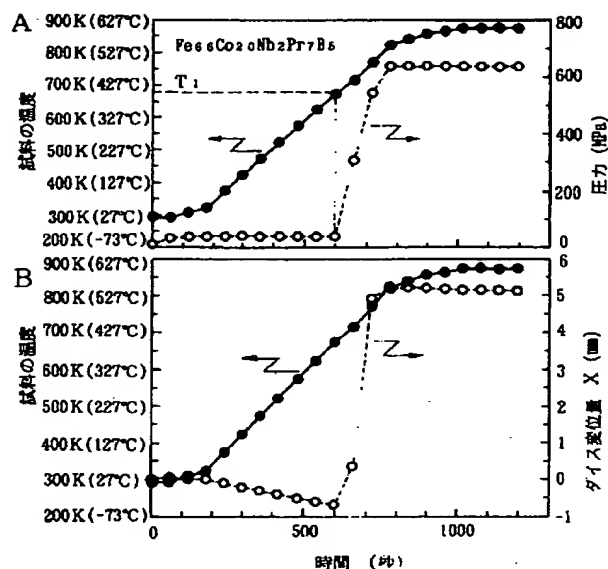
【図5】



【図6】



【図8】



フロントページの続き

(72)発明者 牧野 彰宏  
東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプ  
ス電気株式会社内

(72)発明者 山本 豊  
東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプ  
ス電気株式会社内



(72) 発明者 井上 明久  
宮城県仙台市青葉区川内元支倉35番地 川  
内住宅11-806

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**